

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **06295617 A**(43) Date of publication of application: **21.10.94**

(51) Int. Cl.

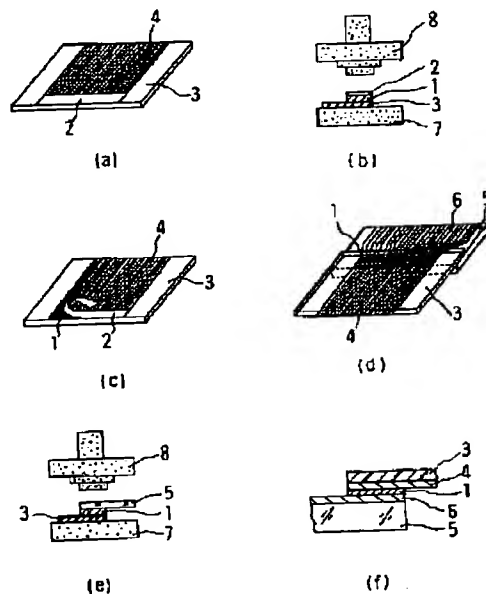
H01B 1/22**C09J 9/02****H05K 3/32**(21) Application number: **05079846**(22) Date of filing: **06.04.93**(71) Applicant: **FUJI KOBUNSHI KOGYO KK**(72) Inventor: **KOIZUMI MASAKAZU
FUNAHASHI HAJIME****(54) ANISOTROPIC CONDUCTIVE ADHESIVE COMPOUND**

(57) Abstract:

PURPOSE: To improve electrical continuity and make possible highly reliable circuit connection having a repairable characteristic and capable of maintaining the service life of product over a long period by generating connection with radical polymerization as well as normal open-ring polymerization of epoxy group

CONSTITUTION: In an adhesive compound for electrically connecting electric parts to a circuit board and performing electrical connection between both circuit boards, a functional group capable of radical polymerization including double connection is introduced as epoxy resin, and therewith radical starting agent, epoxy resin setting agent, conductive material and coupling agent is mixed. This compound 1 is adhered to a circuit part 4 of FPC and the like and they are heat adhered and connected to a circuit part 6 of NESA glass 5.

COPYRIGHT: (C)1994,JPO



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-295617

(43)公開日 平成6年(1994)10月21日

(51)Int.Cl.⁵

H 0 1 B 1/22

C 0 9 J 9/02

H 0 5 K 3/32

識別記号

D

J B A

B

庁内整理番号

7244-5G

7415-4J

7128-4E

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 10 頁)

(21)出願番号

特願平5-79846

(22)出願日

平成5年(1993)4月6日

(71)出願人 000237422

富士高分子工業株式会社

愛知県名古屋市中区千代田5丁目21番11号

(72)発明者 小泉 正和

愛知県西加茂郡小原村鍛冶屋敷175番地

富士高分子工業株式会社愛知工場内

(72)発明者 舟橋 一

愛知県西加茂郡小原村鍛冶屋敷175番地

富士高分子工業株式会社愛知工場内

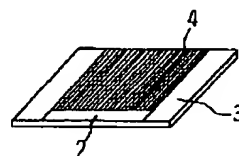
(74)代理人 弁理士 池内 寛幸 (外1名)

(54)【発明の名称】 異方導電性接着剤組成物

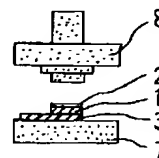
(57)【要約】

【目的】 電気部品と回路基板との接続又は回路基板相互間を電氣的に接続するための接着剤組成物において、通常のエポキシ基の開環重合に加えラジカル重合による結合が発生させることにより、導通信性能を向上させ、かつリペア性を有し、製品寿命を長時間維持できる高信頼性の回路接続をが可能にする。

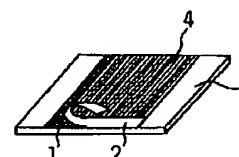
【構成】 エポキシ樹脂として二重結合を含むラジカル重合可能な官能基を導入し、これにラジカル開始剤と、エポキシ硬化剤と、導電性物質とカップリング剤配合する。この接着組成物1は、FPC3等の回路部4に接着させ、これをネサガラス5の回路部6に加熱接着して接続する。



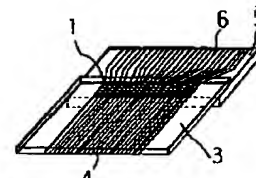
(a)



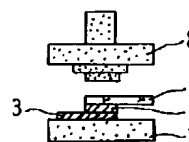
(b)



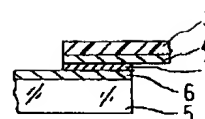
(c)



(d)



(e)



(f)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 電気部品と回路基板との接続又は回路基板相互間を電気的に接続するための接着剤組成物であって、前記接着剤組成物は接着性マトリックス樹脂とラジカル開始剤と導電性物質及びカップリング剤とを少なくとも含み、前記マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂を含むことを特徴とする異方導電性接着剤組成物。

【請求項2】 接着剤組成物中にエポキシ硬化剤をさらに含む請求項1記載の異方導電性接着剤組成物。

【請求項3】 導電性物質が、金属粉末または樹脂粒子の表面に金属が被覆された粒子である請求項1記載の異方導電性接着剤組成物。

【請求項4】 カップリング剤が、エポキシ系シランカップリング剤である請求項1記載の異方導電性接着剤組成物。

【請求項5】 接着剤組成物中に、カルボキシル基含有アクリルニトリルゴムまたはアクリル樹脂を含む請求項1記載の異方導電性接着剤組成物。

【請求項6】 ラジカル開始剤が過酸化化合物である請求項1記載の異方導電性接着剤組成物。

【請求項7】 電気部品と回路基板との接続又は回路基板相互間を電気的に接続するための接着剤組成物であって、前記接着剤組成物は接着性マトリックス樹脂と導電性物質とカップリング剤及びラジカル開始剤を少なくとも含み、前記マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を含むエポキシ樹脂と、ラジカル重合性多重結合を含まないエポキシ樹脂の組成物であることを特徴とする異方導電性接着剤組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、異方導電性接着剤組成物に関するものであり、電気部品の組立て、特に電気部品と回路基板との接続、または回路基板相互間の接続に好適に使用される異方導電性接着剤組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、液晶ディスプレイのガラス基板とFPC (Flexible printed circuit)、回路基板相互間の接着等のように、接続端子が細かいピッチ（例えば回路本数5本/mm）で並んでいる電気部品の接続方法としては、特開昭61-74205号公報等で提案されている異方導電性接着剤による接続法がよく知られている。従来の異方導電性接着剤の多くは、導電性粒子を熱硬化性樹脂と熱可塑性樹脂からなる接着性マトリックス樹脂中にランダムに分散させたものを、ペースト状あるいはフィルム状に加工して用いられている。

【0003】これらの接着剤の使用法は、この異方導電性接着剤を相対する回路間に設け、加圧加熱等の手段を講じることにより、相対する回路間の電気接続と同時に

隣接する回路間に絶縁性を付与し、相対する回路を接着固定するものである。そして、このような異方導電性接着剤は、熱接着後、回路の再使用を行う場合、アセトン等の有機溶剤またはアルコール系洗浄剤にてリペアが可能とされるものである（以後単に「リペア性」という）。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、前記従来の接着剤は、エポキシ樹脂を硬化させるのにアミン系、酸無水物、フェノール系の硬化剤を使用していたが硬化に時間がかかることに問題があり、その結果、導電性粒子と回路部との接触が悪くなり、導通信頼性が低いという問題があった。

【0005】また、前記エポキシ樹脂硬化剤を高い混率でエポキシ樹脂に混入した場合、硬化の時間が短くなり、導電性粒子と回路部との接触が安定することから導通信頼性は安定するが、製品寿命が短くなるという問題があった。

【0006】本発明は、前記従来技術の課題を解決するため、導通信性能を向上させ、かつリペア性を有し、製品寿命を長時間維持できる高信頼性の回路接続が可能な異方導電性接着剤組成物を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】前記目的を達成するため、本発明の異方導電性接着剤組成物は、電気部品と回路基板との接続又は回路基板相互間を電気的に接続するための接着剤組成物であって、前記接着剤組成物は接着性マトリックス樹脂とラジカル開始剤と導電性物質及びカップリング剤とを少なくとも含み、前記マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂を含むことを特徴とする。

【0008】前記構成においては、接着剤組成物中にエポキシ樹脂硬化剤をさらに含むことが好ましい。また前記構成においては、導電性物質が、金属粉末または樹脂粒子の表面に金属が被覆された粒子であることが好ましい。

【0009】また前記構成においては、導電性物質が金属粉末または樹脂粒子の表面に金属が被覆された有機ポリマ粒子の化合物からなり、かつ平均粒径比が金属で被覆された有機ポリマ粒子1.0に対して金属粉末が0.3～1.0であることが好ましい。

【0010】また前記構成においては、カップリング剤が、エポキシ系シランカップリング剤であることが好ましい。また前記構成においては、接着剤組成物中に、カルボキシル基含有アクリルニトリルゴムまたはアクリル樹脂を含むことが好ましい。

【0011】また前記構成においては、ラジカル開始剤は過酸化化合物であることが好ましい。請求項1記載の異方導電性接着剤組成物。この場合、過酸化化合物の配合量は、0.05～1.0wt%程度が好ましい。

【0012】次に本発明の第2の異方導電性接着剤組成物は、電気部品と回路基板との接続又は回路基板相互間を電気的に接続するための接着剤組成物であって、前記接着剤組成物は接着性マトリックス樹脂と導電性物質とカップリング剤及びラジカル開始剤を少なくとも含み、前記マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を含むエポキシ樹脂と、ラジカル重合性多重結合を含まないエポキシ樹脂の組成物であることを特徴とする。

【0013】

【作用】前記本発明の第1番目の発明の構成によれば、マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂を含み、かつラジカル開始剤を使用することにより、通常のエポキシ基の開環重合に加えラジカル重合による結合が発生する。これにより導通信頼性を向上させ、かつリペア性を有し、製品寿命を長時間維持できる高信頼性の回路接続が可能な異方導電性接着剤組成物を実現できる。

【0014】前記構成においては、導電性物質は、金属粉末または樹脂粒子の表面に金属が被覆されたものであることが、接続品の正確な電導性を得るために好ましい。また前記構成においては、導電性物質は金属粉末または樹脂粒子表面に金属が被覆された有機ポリマ粒子1.0に対して、金属粉末が0.3～1.0であることが、押圧接着したときに前記金属被覆有機ポリマ粒子が偏平化などにより電気導通方向に並び、接続品のさらに正確な導電性を得るために好ましい。

【0015】また前記構成においては、カップリング剤としてはアミノシランカップリング剤、ビニルシランカップリング剤、チタン系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤など公知のいかなるものも使用できるが、特にエポキシランカップリング剤を用いることが耐湿性をさらに向上するために好ましい。さらに好ましくは、γ-グリシドキシプロピルトリアルコキシシランを用いれば、官能基にエポキシ基と加水分解性のメトキシ基をもっているため、耐湿性が向上できる。カップリング剤の好ましい配合量は、0.1～7重量%程度である。

【0016】さらに前記構成においては、接着性マトリックス樹脂中への導電粒子の分散性を向上するため、およびフィルム形成性向上のため、及びリペア性向上のため接着剤組成物中にカルボキシル基含有アクリルニトリルゴムまたはアクリル樹脂を含むことが好ましい。カルボキシル基含有アクリルニトリルゴムまたはアクリル樹脂の好ましい配合量は、0.1～20重量%程度である。

【0017】次に本発明の第2番目の発明の構成によれば、接着剤組成物は接着性マトリックス樹脂と導電性物質とカップリング剤及び過酸化化合物を少なくとも含み、前記マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂と、ラジカル重合性多重結合を有さ

ないエポキシ樹脂を含むことにより、さらに通常の（エポキシ基の開環重合とラジカル重合による結合の割り合いを制御できる。前記において、ラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂と、ラジカル重合性多重結合を有さないエポキシ樹脂との組成比は、9:1～1:9の範囲で使用できる。

【0018】さらに前記構成によれば、高温、高湿度環境下において接着強度が低下するのを防止でき、かつ接続条件幅が広く、高信頼性を有し、超高密度の回路接続が可能であるとともに、リペア性にも優れた異方導電性接着剤組成物とすることができる。

【0019】

【実施例】本発明において使用される接着性マトリックス樹脂は、それ自身が電気絶縁性に優れたものであることが好ましい。また接続プロセスにおいて、接着される相対する二つの部品の空隙を流れることができる程度に流動性を持っているとともに、熱、光、電子線などによって硬化して強固な接着層を形成する性質を有していることが好ましい。さらにマトリックス樹脂は、接続時の誤動作などにより相対する回路の位置ずれが生じても取り外しができ、回路の再使用が可能であること、いわゆる「リペア性」を有しているとともに、熱保存時の導通性を保持するものが好ましく用いられる。

【0020】ラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂は、それらをエポキシ樹脂をアルキッド樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、グアナミン樹脂、尿素樹脂、不乾性油脂脂肪酸などの一種または二種以上で変性したものでよい。なおエポキシ樹脂との変性物は、ここに挙げたものに限定されるものではない。

【0021】接着剤組成物中のマトリックス樹脂の配合量は、特に限定されないが、接着性および絶縁信頼性の点からは、固形分重量で45重量%以上、好ましくは50～95重量%の範囲が好ましく、より好ましくは55～90重量%である。

【0022】接着剤組成物中のマトリックス樹脂中へ導通信頼性向上のため、ラジカル開始剤を配合する。ラジカル開始剤の好ましい配合量は0.05～1.0重量%である。ラジカル開始剤としては、ジキュミルパーオキサイド、過酸化ベンゾイルなどの過酸化化合物が好ましいが、そのほか、アゾビスイソブチロニトリル等のアゾ系化合物、過硫酸塩-第1鉄塩などのレドックス系化合物など公知のいかなる開始剤も使用できる。

【0023】本発明において用いられる導電性物質としては、特に限定されるものではないが、それ自身が導通性に優れた金属粉末または表面が金属で被覆された有機ポリマ粒子またはこれらの混合物など好ましく用いられる。

【0024】金属粉末としては、白金、金、銀、ニッケル、コバルト、銅、錫、アルミニウムおよびパラジウムなどの一種または二種以上の混合物が好適に用いられ

10

20

30

40

50

る。また単一組成のみでなく、ハンダのごとき合金や、ニッケルおよび銅などに金などをメッキしたものも好ましく用いられる。勿論金属粉末としては、ここに挙げたものに限定されない。

【0025】金属粉末の平均直径は、特に限定されないが、導通信頼性および絶縁性の点からは0.3 μ m以上40 μ m未満の範囲が好ましく、より好ましくは0.5 \sim 16 μ mの範囲である。

【0026】金属粉末の形状は、フレーク状または球状のどちらかでもよいが、より好ましくは球状であり、かつ粒径の揃ったものが好ましく用いられる。金属で被覆された有機ポリマ粒子のポリマ成分としては、エポキシ、フェノールなどの熱硬化性樹脂、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエステルおよびポリスチレンなどの熱可塑性樹脂、ポリブタジエン、ニトリルゴムおよびブタジエンスチレンゴムなどの各種ゴムなど広範囲の中から選ぶことができるが、エポキシ樹脂からなる粒子は、優れたメッキ粒子を与えるため好ましく用いられる。

【0027】被覆される金属は、金、白金、銀、錫、ニッケル、銅、亜鉛、アルミニウム、パラジウムおよびコバルトなどが好適に用いられる。単一組成の被覆のみでなく、ハンダのごとき合金被覆も用いられる。最下層に銅、次にニッケル、最上層に金というように複合被覆として用いられることは、コストと性能のバランス上から好ましい。

【0028】前記複合被覆において、最上層をハンダとしたものも用いることができる。被覆される金属の量は、その体積が有機ポリマ粒子の体積を越えないことが好ましく、より好ましくは30重量%以下のものが好適に用いられる。

【0029】表面に金属を被覆した有機ポリマ粒子の平均直径は、特に限定されないが、面接続による導通信頼性および絶縁信頼性の点からは、1 μ m以上40 μ m未満が好ましく、より好ましくは1 \sim 20 μ mの範囲であって、かつ粒径の揃った球状に近いものがより好ましく用いられる。

【0030】導通信頼性および取扱い性の点からは金属粉末と金属が被覆された有機ポリマ粒子との混合物を使用するのがよく、その場合の金属粉末と金属が被覆された有機ポリマ粒子の平均直径の比は、特に限定されないが、表面に被覆された金属の剥離や破損を生ぜず、かつ金属で被覆された有機ポリマ粒子の変形を適度に行わせ、導通信頼性を確保する点からは、金属で被覆された有機ポリマ平均粒子直径1.0に対して、金属粉末の平均粒子直径が0.1 \sim 1.0 μ mの範囲が好ましい。より好ましくは0.3 \sim 0.8 μ mである。

【0031】導電性物質の配合量、すなわち金属粉末および/または金属で被覆された有機ポリマ粒子の配合量は、特に限定されないが、個々の粒子がほぼ独立を保ち

接着剤層全体が横方向に絶縁をもち、接続体の隣接する回路間の絶縁信頼性を確実にする点、および導通信頼性の点から、接着剤組成物中に固形分重量で1 \sim 30重量%の範囲で含有するのがよい。より好ましくは3 \sim 15重量%である。また両者の混合物を使用する場合の好ましい割合は、金属粉末を0.5 \sim 30重量%、金属で被覆された有機ポリマ粒子を99.5 \sim 70重量%の割合で使用するのが導通信頼性の点から好ましい。

【0032】本発明の異方導電性接着剤組成物は、通常導電性物質を分散含有するペースト状態として、一方の部品の少なくとも端子部、あるいは全面に塗布しておき、必要に応じて乾燥して溶剤を除去したのち他の部品と向かい合わせてホットプレスして、電気接続体としたり、さらに異方導電性接着剤組成物を、接着フィルムとして二つの部品間に挟んでホットプレスし、電気接続体とすることもできる。

【0033】ペーストは通常希釈剤で希釈されており、希釈剤としては、ケトン類、アルコール類、セロソルブ類、ジオキサン、トルエン等の芳香族炭化水素および酢酸エチルなどの有機溶剤が挙げられる。接着フィルムとして使用する場合は、上記ペーストを製膜し、溶剤を除去してフィルムとしたり、希釈剤を用いながら、溶融製膜により直接フィルムとする方法等が用いられるが、これに限定されない。

【0034】異方導電性接着剤組成物をフィルムとして用いる場合のフィルムの膜厚は1 \sim 100 μ mの範囲が好ましく、1 \sim 50 μ mの範囲がより好ましい。また、カップリング剤は固形分重量で0.1 \sim 7重量%加えるのが耐湿性の向上のために好ましい。さらに、接着剤組成物中にカルボキシル基含有アクリルニトリルゴムまたはアクリル樹脂を固形分重量で0.1 \sim 20重量%加えるのが、導電粒子の分散性を向上するため、及びフィルム形成性向上のために好ましい。

【0035】また、エポキシ樹脂のエポキシ基を開環反応させるため、アミン類等のエポキシ硬化剤を加えることが望ましい。エポキシ硬化剤は公知のいかなる化合物も使用できる。エポキシ硬化剤は1 \sim 15重量%加えるのが好ましい。

【0036】次に本発明の接着組成物の一例の使用方法を図面を用いて説明する。図1(a)～(f)はFPC等の回路部に本発明のフィルム状の接着組成物を接着させ、これをネサガラスに接続する一例プロセス図である。図1(a)～(f)において、1は本発明のフィルム状接着組成物、2は保護フィルム、3はFPC、4はFPC上の回路部、5はネサガラス、6はネサガラス上の回路部、7は下部ヒータ、8は上部ヒータである。まず図1(a)に示すように、FPC3などの回路部4にフィルム状接着組成物1を仮付けする。次に図1(b)に示すように、ヒーター7、8を用いて仮接着する。次に図1(c)に示すように、保護フィルム2を剥がす。

10

20

30

40

50

次に図1(d)に示すように、FPC3を逆にし、ネサガラス5の表面に形成されている回路部6とフィルム状接着組成物1を位置合わせする。その状態でヒーター7、8を用いて本接着する(図1(e))。得られた接続体が図1(f)である。すなわちFPC3上の回路4とネサガラス5の回路6とが、接着組成物1によって接続一体化される。この場合、接着組成物1は垂直方向にのみ導通することになる。

【0037】以下具体的実験例により本発明をさらに詳しく説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

(実施例1)

(I) ラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂の合成方法

図2にしたがって合成方法を下記に説明する。

(A) ビスフェノールAとエピクロロヒドリンとを反応させたエポキシ樹脂(油化シェルエポキシ社製、製品名:1001T75)を1リットル秤量し、ナスフラスコに加え、よく乾燥させた。次にArガス雰囲気下でPBr₃を少しずつ加え、16時間攪拌した。粗生成物は、カラムクロマトグラフィー(展開溶媒:メチルクロライド-メタノール系)で精製し反応物(a)を得た。この反応により、ビスフェノールAユニット部分の一部の-CH₃を-CH₂Brにした。

*

(1)二重結合を導入したエポキシ樹脂:前記生成物(d)	45.0重量%
(2)ラジカル開始剤(過酸化化合物:ジキュミルパーオキサイド)	0.5重量%
(3)導電性物質:Auコートポリスチレン粒子(平均粒子径6μm)	3.0重量%
(4)エポキシ硬化剤(荒川化学社製、KP-903)	6.0重量%
(5)エポキシ硬化剤(ベンジルジメチルアミン)	4.5重量%
(6)カップリング剤:γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン	3.0重量%
(7)カルボキシル基含有アクリルニトリルゴム(日本ゼオン社製、NBR1072J)	10.0重量%
(8)重合禁止剤:ヒドロキノン	1.0重量%
(9)エポキシ改質剤(三洋化成工業社製、BP-3P)	5.0重量%
(10)希釈剤:トルエン	22.0重量%

このフィルムを35μmの銅箔をクラッドしたポリイミドフィルムを原料として5本/mmのピッチの端子をもつ試験回路(FPC)を1枚と、30Ω/□のITO(インジウム-スズ酸化物、透明電極)ガラスを原料として5本/mmのピッチの端子をもつ試験回路を1枚作り、FPC端子部に前記のフィルムを100℃、10kg/cm²で5秒間ホットプレスした後、直ちに冷却し、フィルムをFPC仮付した。

【0038】次に基材を剥離し、FPCとITOガラスの端子部同志を向かい合わせて180℃、20kg/cm²で20秒間ホットプレスをした後、直ちに冷却した。こうして得られた接続体を80℃、95%RHの高温高湿下にて保存テストした結果を表1に示す。

【0039】(実施例2)

(I) ラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂 ※50

* (B) 前記生成物(a)にアセトン、水および炭酸ナトリウムを加え、80℃で煮沸しながら16時間攪拌した。粗生成物は、カラムクロマトグラフィー(展開溶媒:メチルクロライド-メタノール系)で精製し反応物(b)を得た。この反応により、前記-CH₂Brを-CH₂OHにした。

(C) 1リットルのナスフラスコに前記生成物(b)とアセトンを入れ、氷浴下でMnO₂を少しずつ加えて16時間攪拌した。粗生成物は、カラムクロマトグラフィー(展開溶媒:メチルクロライド-メタノール系)で精製し反応物(c)を得た。この反応により、前記-CH₂OHを-CH₂=Oにした。

(D) 500mlのナスフラスコをArガス雰囲気下でイリド合成し、そこへ前記生成物(c)を氷浴下0℃で少しずつ加えて16時間攪拌した。粗生成物は、減圧蒸留によって最終生成物(d)を得た。この反応により、前記-CH₂=Oを-CH=CH₂にした。

(II) フィルム状の異方導電性接着剤組成物の作成方法

20 下記の組成物を攪拌機に仕込み、分散させた後、塗工乾燥機を用いて基材表面に膜厚22μmのフィルムを得た。このときの基材としては、弗素系樹脂フィルムを用いた。

※の合成方法

図3にしたがって合成方法を下記に説明する。

(E) ビスフェノールAとエピクロロヒドリンとを反応させたエポキシ樹脂(油化シェルエポキシ社製、製品名:1001T75)を1リットル秤量し、ナスフラスコに加え、これにアセトン、水および炭酸ナトリウムを加え、80℃で煮沸しながら16時間攪拌した。粗生成物は、カラムクロマトグラフィー(展開溶媒:メチルクロライド-メタノール系)で精製し反応物(e)を得た。この反応により、エピクロロヒドリンのユニット部分の-CH₂CH(OH)CH₂-を-CH₂CH(=O)CH₂-にした。

(F) 500mlのナスフラスコをArガス雰囲気下でイリド合成し、そこへ前記生成物(e)を氷浴下0℃で少しずつ加えて16時間攪拌した。粗生成物は、減圧

蒸留によって最終生成物 (f) を得た。この反応により、前記 $-\text{CH}_2\text{CH}(\text{=O})\text{CH}_2-$ を $-\text{CH}_2\text{CH}(\text{=CH}_2)\text{CH}_2-$ にした。

(II) フィルム状の異方導電性接着剤組成物の作成方法

*

- (1) 二重結合を導入したエポキシ樹脂：前記生成物 (f) 25.0 重量%
 エポキシ樹脂 (油化シェルエポキシ社製、製品名：1001T75) 25.0 重量%
 (2) ラジカル開始剤 (過酸化化合物：ジキユミルパーオキサイド) 0.7 重量%
 (3) 導電性物質：Au コートポリスチレン粒子 (平均粒子径 $6\mu\text{m}$) 3.0 重量%
 (4) エポキシ硬化剤 (荒川化学社製、KP-903) 6.0 重量%
 (5) エポキシ硬化剤 (ベンジルジメチルアミン) 5.0 重量%
 (6) カップリング剤： γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 3.0 重量%
 (7) カルボキシル基含有アクリルニトリルゴム (日本ゼオン社製、NBR1072J) 10.0 重量%
 (8) 重合禁止剤：ヒドロキノン 1.0 重量%
 (9) エポキシ改質剤 (三洋化成工業社製、BP-3P) 5.0 重量%
 (10) 希釈剤：トルエン 16.3 重量%

このフィルムを $35\mu\text{m}$ の銅箔をクラッドしたポリイミドフィルムを原料として 5 本/mm のピッチの端子をもつ試験回路 (FPC) を 1 枚と、 $30\Omega/\square$ の ITO (インジウムスズ酸化物、透明電極) ガラスを原料として 5 本/mm のピッチの端子をもつ試験回路を 1 枚作り、FPC 端子部に前記のフィルムを 100°C 、 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ で 5 秒間ホットプレスした後、直ちに冷却し、フィルムを FPC 仮付した。

* 下記の組成物を攪拌機に仕込み、分散させた後、塗工乾燥機を用いて基材表面に膜厚 $22\mu\text{m}$ のフィルムを得た。このときの基材としては、弗素系樹脂フィルムを用いた。

※【0040】次に基材を剥離し、FPC と ITO ガラスの端子部同志を向かい合わせて 180°C 、 $20\text{kg}/\text{cm}^2$ で 20 秒間ホットプレスをした後、直ちに冷却した。こうして得られた接続体を 80°C 、95%RH の高温高湿下にて保存テストした結果を表 1 に示す。

【0041】

【表 1】

※

評価結果		実施例 1	実施例 2
導通特性	初期 (Ω)	13.5 (19.8、11.3)	14.2 (20.5、12.0)
		導通不良箇所 OPEN 数 = 0 ケ所	導通不良箇所 OPEN 数 = 0 ケ所
	試験後 (Ω)	22.5 (35.2、16.8)	29.9 (42.6、17.8)
		導通不良箇所 OPEN 数 = 0 ケ所	導通不良箇所 OPEN 数 = 8 ケ所
接着特性	初期 (kg/cm)	0.82	0.75
	試験後 (kg/cm)	0.77	0.67
リペア性	アセトン	○	○
	リグロイン	○	○
製品寿命	常温保管 (日)	14	14
	冷凍保管 (月)	3.5	3.5

(備考 1) 表示してある数値は測定平均値 ($N=30$) を表し、○ 内の数値は、最大値と最小値を表す。

(備考 2) ○ はリペア性良好の意味。

(備考 3) 常温保管は、 25°C での評価。冷凍保管は、 -2°C での評価。

【0042】 (評価)

* 高温高湿保存テスト： 80°C 、95%RH、200 hours.

(接続条件)

実施例 1

* FPC (1 オンス、5 本/mm)、ITO ガラス板 ($30\Omega/\square$)

★ * 転写： 100°C 、 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ 、5 秒

* 本接着： 180°C 、 $20\text{kg}/\text{cm}^2$ 、20 秒

実施例 2

* FPC (1 オンス、5 本/mm)、ITO ガラス板 ($30\Omega/\square$)

* 転写： 100°C 、 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ 、5 秒

★ 50 * 本接着： 180°C 、 $20\text{kg}/\text{cm}^2$ 、20 秒

(評価条件)

*導通抵抗: ITOとFPC回路間を電流0.2mAで測定。(N=40/各タイプ)(電流可変抵抗測定装置)

*リペア性: 本接着後、ITOをFPC回路方向に剥離し、回路側に付着した接着剤を溶剤にて除去。

接着特性: FPCとガラス板を接続後、FPC回路方向に90度剥離(N=5/各タイプ)(万能型引張試験

- ①エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ社製、製品名: 1001T75) 45.0重量%
- ②導電性物質: Auコートポリスチレン粒子(平均粒子径6 μ m) 3.0重量%
- ③エポキシ硬化剤(荒川化学社製、KP-903) 6.0重量%
- ④エポキシ硬化剤(ベンジルジメチルアミン) 4.5重量%
- ⑤カップリング剤: γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 3.0重量%
- ⑥カルボキシル基含有アクリルニトリルゴム(日本ゼオン社製、NBR1072J) 10.0重量%
- ⑦エポキシ改質剤(三洋化成工業社製、BP-3P) 5.0重量%
- ⑧希釈剤: トルエン 22.0重量%

このフィルムを35 μ mの銅箔をクラッドしたポリイミドフィルムを原料として5本/mmのピッチの端子をもつ試験回路(FPC)を1枚と、30 Ω /□のITO(インジウムスズ酸化物、透明電極)ガラスを原料として5本/mmのピッチの端子をもつ試験回路を1枚つくり、FPC端子部に前記のフィルムを100℃、10kg/cm²で5秒間ホットプレスした後、直ちに冷却し、フィルムをFPC仮付した。次に基材を剥離し、FPCとITOガラスの端子部同志を向かい合わせて180℃、20kg/cm²で20秒間ホットプレスをした ※

- ①エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ社製、製品名: 1001T75) 45.0重量%
- ②導電性物質: Auコートポリスチレン粒子(平均粒子径6 μ m) 3.0重量%
- ③エポキシ硬化剤(荒川化学社製、KP-903) 12.0重量%
- ④エポキシ硬化剤(ベンジルジメチルアミン) 9.0重量%
- ⑤カップリング剤: γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 3.0重量%
- ⑥カルボキシル基含有アクリルニトリルゴム(日本ゼオン社製、NBR1072J) 10.0重量%
- ⑦エポキシ改質剤(三洋化成工業社製、BP-3P) 5.0重量%
- ⑧希釈剤: トルエン 13.0重量%

このフィルムを35 μ mの銅箔をクラッドしたポリイミドフィルムを原料として5本/mmのピッチの端子をもつ試験回路(FPC)を1枚と、30 Ω /□のITO(インジウムスズ酸化物、透明電極)ガラスを原料として5本/mmのピッチの端子をもつ試験回路を1枚つくり、FPC端子部に前記のフィルムを100℃、10kg/cm²で5秒間ホットプレスした後、直ちに冷却し、フィルムをFPC仮付した。次に基材を剥離し、FPCとITOガラスの端子部同志を向かい合わせて180℃、20kg/cm²で20秒間ホットプレスをした後、直ちに冷却した。こうして得られた接続体の導通抵抗値と製品寿命評価の結果を表2に示す。

【0045】

【表2】

*機、引張速度30mm/min)

【0043】(比較例1)

(1) フィルム状の異方導電性接着剤組成物の作成方法

下記の組成物を攪拌機に仕込み、分散させた後、塗工乾燥機を用いて基材表面に膜厚22 μ mのフィルムを得た。このときの基材としては、弗素系樹脂フィルムを用いた。

- ①エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ社製、製品名: 1001T75) 45.0重量%
- ②導電性物質: Auコートポリスチレン粒子(平均粒子径6 μ m) 3.0重量%
- ③エポキシ硬化剤(荒川化学社製、KP-903) 6.0重量%
- ④エポキシ硬化剤(ベンジルジメチルアミン) 4.5重量%
- ⑤カップリング剤: γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 3.0重量%
- ⑥カルボキシル基含有アクリルニトリルゴム(日本ゼオン社製、NBR1072J) 10.0重量%
- ⑦エポキシ改質剤(三洋化成工業社製、BP-3P) 5.0重量%
- ⑧希釈剤: トルエン 22.0重量%

※後、直ちに冷却した。こうして得られた接続体の導通抵抗値と製品寿命評価の結果を表2に示す。

【0044】(比較例2)

(1) フィルム状の異方導電性接着剤組成物の作成方法

下記の組成物を攪拌機に仕込み、分散させた後、塗工乾燥機を用いて基材表面に膜厚22 μ mのフィルムを得た。このときの基材としては、弗素系樹脂フィルムを用いた。

接着剤	導通抵抗値(Ω)*1)		製品寿命 (冷凍保管時)
	初期	200hr	
実施例1	13.5	22.5	3.5ヶ月
実施例2	14.2	29.9	3.5ヶ月
比較例1	14.0	open発生	2.5ヶ月
比較例2	14.1	28.7	1ヶ月未満

(注1) 80℃、95%RHの試験。

★【0046】表2から明らかな通り、比較例1による接続体は導通信頼性があまり良くなく、超高密度の電気接続体としては製品寿命が短かった。これに対して本発明の実施例の異方導電性接着剤を用いた接続体の場合は、導通信頼性に優れていて超高密度の電気接続が可能になった上、製品寿命も大幅に長くなった。

★50 【0047】

【発明の効果】以上説明した通り本発明の第1番目の異方導電性接着剤によれば、マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂を含み、かつラジカル開始剤を使用することにより、通常のエポキシ基の開環重合に加えラジカル重合による結合が発生する。これにより、導通信頼性能を向上させ、かつリペア性を有し、製品寿命を長時間維持できる高信頼性の回路接続が可能な異方導電性接着剤組成物を実現できる。

【0048】次に本発明の第2番目の異方導電性接着剤によれば、接着剤組成物は接着性マトリックス樹脂と導電性物質とカップリング剤及びラジカル開始剤を少なくとも含み、前記マトリックス樹脂はラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂と、ラジカル重合性多重結合を有さないエポキシ樹脂を含むことにより、さらに通常のエポキシ基の開環重合とラジカル重合の比率を制御できる。これにより、導通信頼性能を向上させ、かつリペア性を有し、製品寿命を長時間維持できる高信頼性の回路接続が可能な異方導電性接着剤組成物を実現できる。 *

* 【図面の簡単な説明】

【図1】 (a) ~ (f) はFPC等の回路部に本発明のフィルム状の接着組成物を接着させ、これをネサガラスに接続する一例プロセス図である。

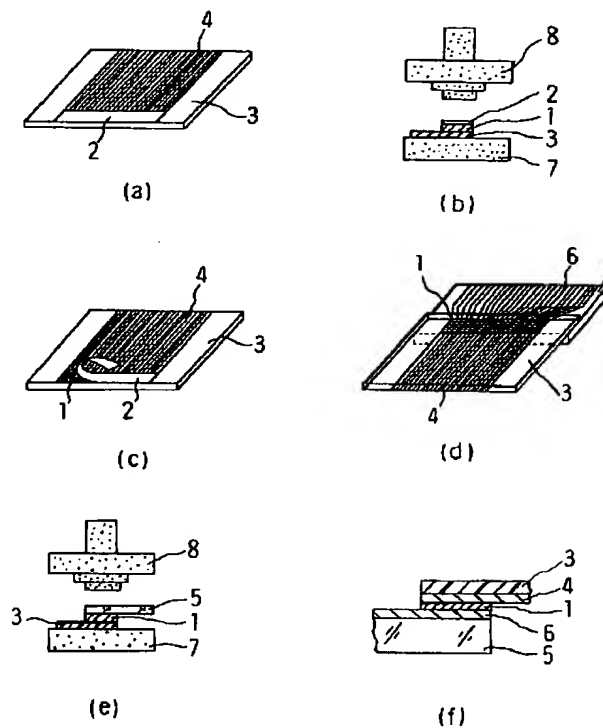
【図2】 実施例1のラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂の合成方法を示す反応工程図である。

【図3】 実施例2のラジカル重合性多重結合を有するエポキシ樹脂の合成方法を示す反応工程図である。

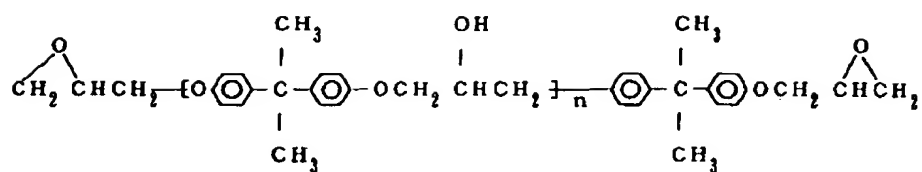
【符号の説明】

- 10 1 フィルム状接着組成物
2 保護フィルム
3 FPC
4 FPC上の回路部
5 ネサガラス
6 ネサガラス上の回路部
7 下部ヒータ
8 上部ヒータ

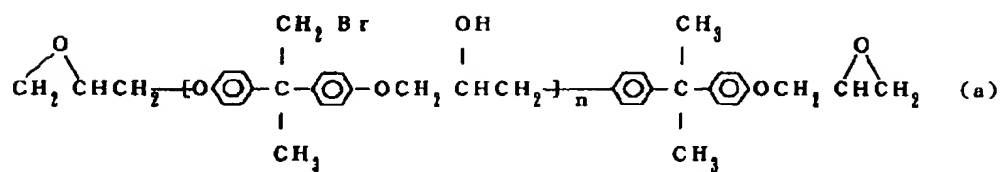
【図1】



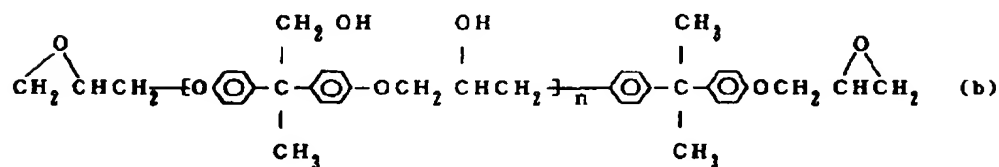
【図2】



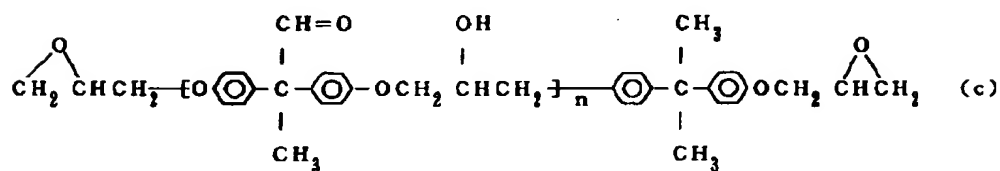
(A) ↓ PBr₃



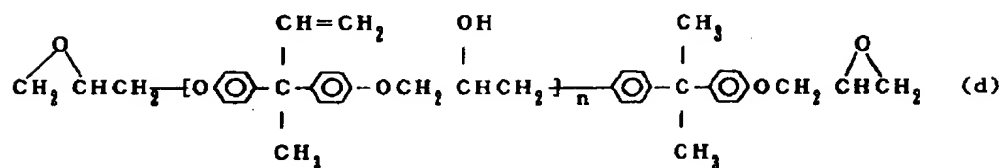
(B) ↓ CH₃COCH₃, H₂O, Na₂CO₃



(C) ↓ MnO₂



(D) ↓ PPh₃—CH₂



【図3】

